

LINEAR AROMATIC POLYMER, ITS MANUFACTURING METHOD AND COATING FLUID FOR FORMING INSULATING FILM

Publication number: JP2002020482

Publication date: 2002-01-23

Inventor: IWASE SADANOBU; YOKOTA AKIRA; CHE
HYONCHORU

Applicant: SUMITOMO CHEMICAL CO

Classification:

- international: C08J3/24; C08G63/91; C08G65/48; C08G75/23;
C09D5/25; C09D171/12; H01B3/30; H01B3/42;
H01B3/46; C08J3/24; C08J3/24; C08G63/00;
C08G65/00; C08G75/00; C09D5/25; C09D171/00;
H01B3/30; H01B3/42; H01B3/46; C08J3/24; (IPC1-7):
C08J3/24; C08G65/48; C08G63/91; C08G75/23;
C09D5/25; C09D171/12; H01B3/30; H01B3/42;
H01B3/46; C08L101/02

- European:

Application number: JP20000203650 20000705

Priority number(s): JP20000203650 20000705

[Report a data error here](#)

Abstract of JP2002020482

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a linear aromatic polymer which comprises a thermosetting resin curable through a crosslinking reaction even at 280 deg.C or below, and can be used as a material for an interlayer insulating film, to provide its manufacturing method, and to obtain a coating liquid which can form an insulating film excellent in chemical resistance. **SOLUTION:** The linear aromatic polymer has a structure wherein a functional group represented by formula (1) is directly bonded to an aromatic ring. The manufacturing method involves the steps of metallizing the polymer and then subjecting a compound represented by formula (4) to substitution reaction. The coating liquid for forming an insulating film contains the aromatic polymer. In the formulas, A is C or Si; B1, B2 and B3 are each a 2-10C alkenyl, alkynyl, a 1-10C alkyl, methoxy, ethoxy or phenyl, provided that at least two of B1, B2 and B3 are each a 2-10C alkenyl or alkynyl; and X is a halogen atom.

.....
Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-20482

(P2002-20482A)

(43) 公開日 平成14年1月23日 (2002.1.23)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	キーワード(参考)	
C 0 8 G	65/48	C 0 8 G	65/48	4 F 0 7 0
	63/91		63/91	4 J 0 0 5
	75/23		75/23	4 J 0 2 9
C 0 9 D	5/25	C 0 9 D	5/25	4 J 0 3 0
	171/12		171/12	4 J 0 3 8

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 7 頁) 最終頁に続く

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 7 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2000-203650 (P2000-203650)

(22) 出願日 平成12年7月5日 (2000.7.5)

(71) 出願人 000002093

住友化学工業株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

(72) 発明者 岩瀬 定信

茨城県つくば市北原6 住友化学工業株式会社内

(72) 発明者 横田 明

茨城県つくば市北原6 住友化学工業株式会社内

(74) 代理人 100093285

弁理士 久保山 隆 (外2名)

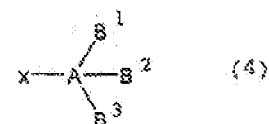
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 線状芳香族ポリマー、その製造方法および絶縁膜形成用塗布液

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 280℃以下であっても架橋反応を起こし硬化し得る熱硬化性樹脂であって、層間絶縁膜材料として用いることができる線状芳香族ポリマーとその製法、および耐薬品性に優れた絶縁膜を形成し得る塗布液を提供する。

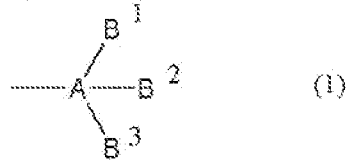
【解決手段】 (1) 下記式(1)で示される官能基が芳香環に直接結合された構造を有する線状芳香族ポリマー。 (2) 該ポリマーをメタル化し、続いて下記式(4)で示される化合物を置換反応させる工程を含む (1) に記載の線状芳香族ポリマーの製造方法。 (3) 前記(1)に記載の芳香族ポリマーを含有する絶縁膜形成用塗料。



(式中、Aは炭素又はケイ素、B¹、B²、B³は炭素数2～10のアルケニル基、アルキニル基、炭素数1～10のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、又はフェニル基。ただし、B¹、B²、B³のうち少なくとも2つは炭素数2～10のアルケニル基、アルキニル基である。Xはハロゲン原子。)

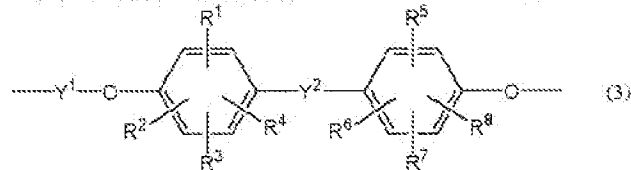
【特許請求の範囲】

【請求項1】下記(1)式で示される官能基が芳香環に直接結合された構造を有することを特徴とする線状芳香族ポリマー。



(式中、Aは、炭素またはケイ素から選ばれ、B¹、B²、B³は、それぞれ独立に炭素数2～10のアルケニル基、炭素数2～10のアルキニル基、炭素数1～10のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、または置換されてもよいフェニル基から選ばれる。ただし、B¹、B²、B³のうち少なくとも二つは、炭素数2～10のアルケニル基または炭素数2～10のアルキニル基である。)

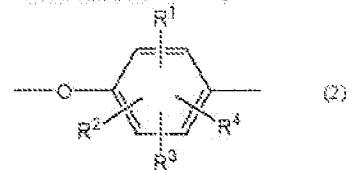
【請求項2】線状芳香族ポリマーが、主鎖にエーテル結合を有することを特徴とする請求項1記載の線状芳香族*



(式中、R¹～R⁸は、それぞれ独立に、水素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数2～10のアルケニル基、炭素数2～10のアルキニル基、炭素数4～10のシクロアルキル基、※

*ポリマー。

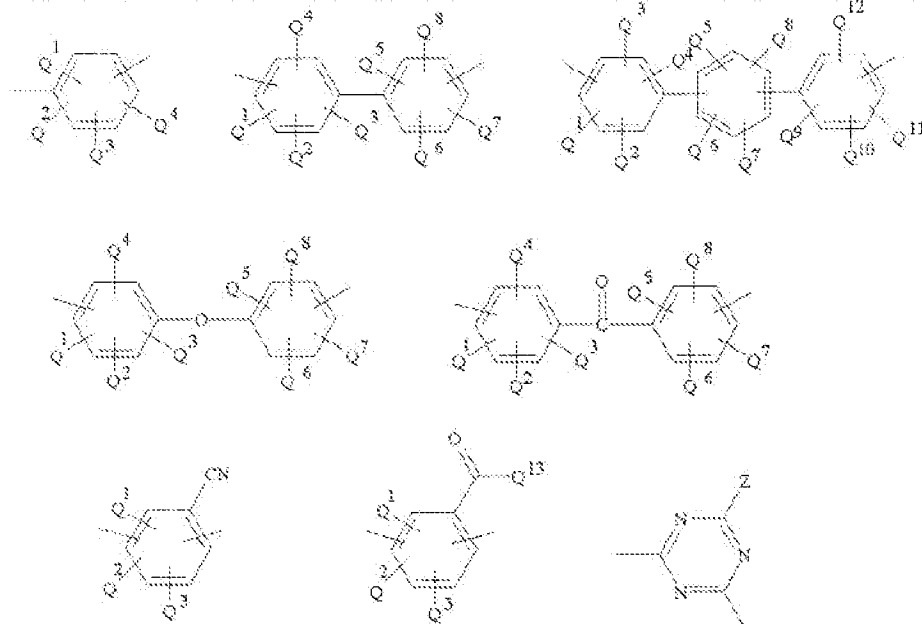
【請求項3】線状芳香族ポリマーが、下記(2)式で示される構造単位を有することを特徴とする請求項1または2記載の線状芳香族ポリマー。



(式中、R¹～R⁴は、それぞれ独立に、水素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数2～10のアルケニル基、炭素数2～10のアルキニル基、炭素数4～10のシクロアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、置換されてもよいフェニル基、または請求項1記載の式(1)で示される官能基から選ばれる。)

【請求項4】線状芳香族ポリマーが、下記(3)式で示される構造単位を有することを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の線状芳香族ポリマー。

※メトキシ基、エトキシ基、置換されてもよいフェニル基、または請求項1記載の式(1)で示される官能基から選ばれる。式中、Y¹は、次に示される官能基のいずれか1つまたは2つ以上の官能基から選ばれる。



(式中、Q¹～Q¹³は、それぞれ独立に水素原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数2～10のアルケニル基、炭素数2～10のアルキニル基から選ばれる。Q¹⁴

は、炭素数1～10のアルキル基、炭素数2～10のアルケニル基、炭素数2～10のアルキニル基、請求項1記載の式(1)で示される官能基から選ばれる。Zは、

水素原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、 $-OZ^1$ 基、または $-NZ^1Z^2$ 基から選ばれる。 Z^1 、 Z^2 、 Z^3 は、それぞれ独立に水素原子、飽和または不飽和炭化水素基、またはエーテル結合を含む基から選ばれる。）

Y^1 は、単結合、炭素数1～20の炭化水素基、エーテル基、ケトン基、またはスルホン基のいずれか1つまたは2つ以上から選ばれる。また、各 $R^1 \sim R^6$ および $Q^1 \sim Q^6$ のうち少なくとも1つは、請求項1記載の式

(1)で示される官能基から選ばれる。）

【請求項5】Aがケイ素である請求項1～4のいずれかに記載の線状芳香族ポリマー。

【請求項6】(1)式が、トリビニルシリル基である請求項1～5のいずれかに記載の線状芳香族ポリマー。

【請求項7】線状芳香族ポリマーをメタル化し、続いて下記(4)式で示される化合物を置換反応させる工程を含むことを特徴とする請求項1～6のいずれかに記載の線状芳香族ポリマーの製造方法。



(式中、Xは、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、またはヨウ素原子から選ばれる。 B^1 、 B^2 、 B^3 は、(1)式における定義と同じである。)

【請求項8】請求項1～6のいずれかに記載の線状芳香族ポリマーを含有することを特徴とする絶縁膜形成用塗布液。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、線状芳香族ポリマーとその製造方法および各種電子デバイス中の絶縁膜形成用塗布液に関する。

【0002】

【従来の技術】電子デバイスにおける金属配線間を絶縁せしめる層間絶縁膜として、従来のシリカ系の膜に代わり、耐熱性を大きく損なうことなく、誘電率の低い有機絶縁膜が注目されている。該有機絶縁膜としては、該電子デバイスの製造プロセスに使用される洗浄液やレジストの剥離剤等に対する耐薬品性が必要とされている。耐薬品性を得る手段の一つとして、加熱により架橋反応を生じる反応基を芳香族ポリマーに導入することが挙げられる。例えば、特公平5-8931号公報には、ポリフェニレンエーテルに加熱により架橋反応を生じる反応基としてアリル基を導入している熱硬化性樹脂が開示されている。しかしながら、液晶表示素子や化合物半導体等のデバイスでは許容されるプロセス温度が低い場合がある。ところが、前記の例では、アリル基を完全に架橋させるためには300℃前後の加熱処理が必要であるの

で、該電子デバイスの製造プロセス等において熱硬化温度が充分低いとはいえなかった。

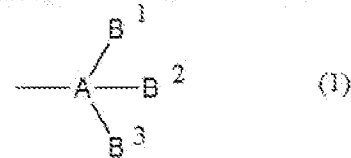
【0003】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、280℃以下の加熱処理であっても架橋反応を起こし硬化する熱硬化性樹脂であって、層間絶縁膜材料として用いることができる線状芳香族ポリマー、その製造方法、および耐薬品性に優れた絶縁膜を形成しうる塗布液を提供することにある。

【0004】

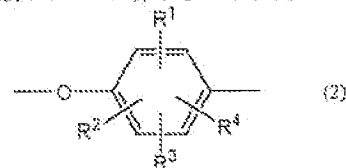
【課題を解決するための手段】本発明者は、種々の樹脂について検討を行った結果、加熱することにより架橋反応を生じる特定の反応基を、線状芳香族ポリマーの芳香環に直接結合することにより、280℃以下の加熱処理であっても硬化反応が生じ、得られる絶縁膜が優れた電気特性、耐薬品性に優れることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0005】すなわち、本発明は、(1)下記(1)式で示される官能基が芳香環に直接結合された構造を有する線状芳香族ポリマーに係るものである。



(式中、Aは、炭素またはケイ素から選ばれ、 B^1 、 B^2 、 B^3 は、それぞれ独立に炭素数2～10のアルケニル基、炭素数2～10のアルキニル基、炭素数1～10のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、または置換されてもよいフェニル基から選ばれる。ただし、 B^1 、 B^2 、 B^3 のうち少なくとも二つは、炭素数2～10のアルケニル基または炭素数2～10のアルキニル基である。)

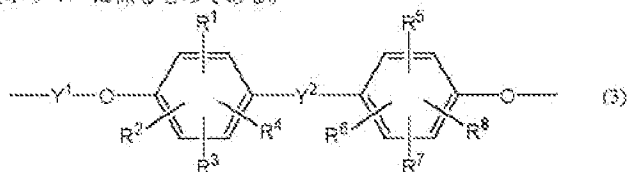
【0006】本発明は、(2)線状芳香族ポリマーが、下記(2)式で示される構造単位を有する(1)記載の線状芳香族ポリマーに係るものである。



(式中、 $R^1 \sim R^4$ は、それぞれ独立に、水素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数2～10のアルケニル基、炭素数2～10のアルキニル基、炭素数4～10のシクロアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、置換されてもよいフェニル基、または(1)記載の式(1)で示される官能基から選ばれる。)

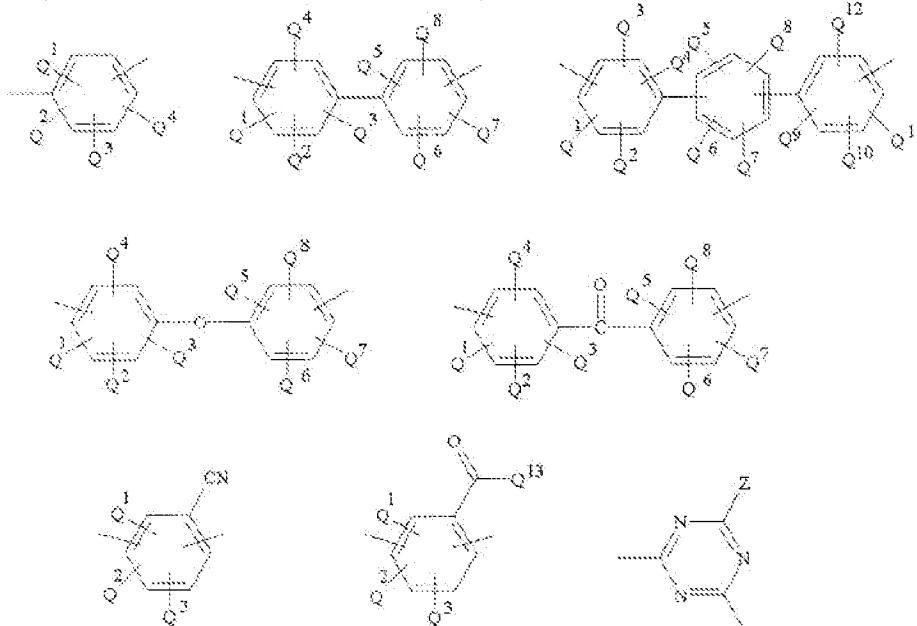
【0007】本発明は、(3)線状芳香族ポリマーが、下記(3)式で示される構造単位を有する(1)または

〔2〕に記載の線状芳香族ポリマーに係るものである。



(式中、 $R^1 \sim R^8$ は、それぞれ独立に、水素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数2～10のアルケニル基、炭素数2～10のアルキニル基、炭素数4～10のシクロアルキル基、*10

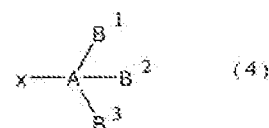
*メトキシ基、エトキシ基、置換されてもよいフェニル基、または請求項1記載の式(1)で示される官能基から選ばれる。式中、 Y^1 は、次に示される官能基のいずれか1つまたは2つ以上の官能基から選ばれる。



(式中、 $Q^1 \sim Q^{13}$ は、それぞれ独立に水素原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数2～10のアルケニル基、炭素数2～10のアルキニル基から選ばれる。 Q^{12} は、炭素数1～10のアルキル基、炭素数2～10のアルケニル基、炭素数2～10のアルキニル基、請求項1記載の式(1)で示される官能基から選ばれる。 Z は、水素原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、 $-OZ^1$ 基、または $-NZ^1Z^2$ 基から選ばれる。 Z^1 、 Z^2 、 Z^3 は、それぞれ独立に水素原子、飽和または不飽和炭化水素基、またはエーテル結合を含む基から選ばれる。)

Y^1 は、単結合、炭素数1～20の炭化水素基、エーテル基、ケトン基、またはスルホン基のいずれか1つまたは2つ以上から選ばれる。また、各 $R^1 \sim R^8$ および $Q^1 \sim Q^{13}$ のうち少なくとも1つは、〔1〕記載の式(1)で示される官能基から選ばれる。)

【0008】また、本発明は、〔4〕線状芳香族ポリマーをメタル化し、続いて下記(4)式で示される化合物を置換反応させる工程を含む〔1〕～〔3〕のいずれかに記載の線状芳香族ポリマーの製造方法に係るものである。



(式中、 X は、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、またはヨウ素原子から選ばれる。 B^1 、 B^2 、 B^3 は、〔1〕式における定義と同じである。)

また、本発明は、〔5〕前記〔1〕～〔3〕のいずれかに記載の線状芳香族ポリマーを含有する絶縁膜形成用塗布液に係るものである。

【0009】

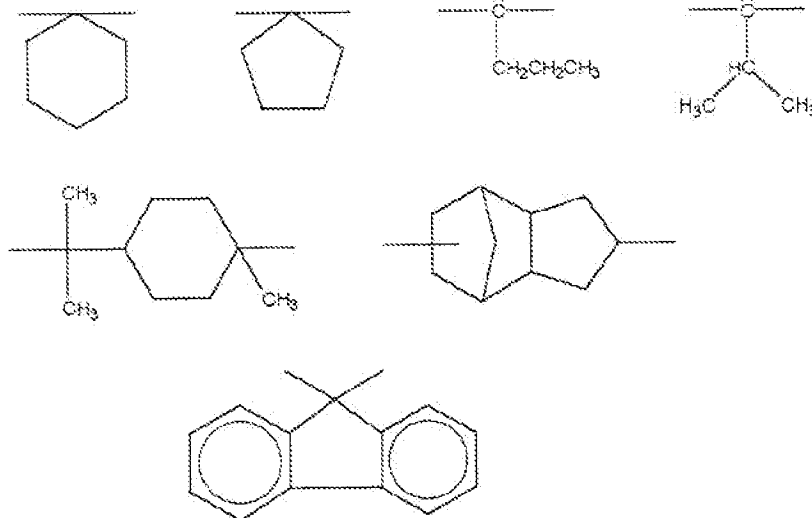
【発明の実施の形態】次に、本発明を詳細に説明する。本発明の線状芳香族ポリマーは、上記(1)式で示される官能基が芳香環に直接結合された構造を有することを特徴とする。本発明における線状芳香族ポリマーとは、芳香環を主鎖に有する芳香族ポリマーであり、芳香族ポリエーテル、芳香族ポリスルホン、芳香族ポリエステル、芳香族ポリエーテルスルホン、芳香族ポリエーテルケトン、芳香族ポリエーテルエーテルケトンなどを挙げることができる。

【0010】これらの中で、本発明の線状芳香族ポリマ

ーとしては、主鎖にエーテル結合を有することが好ましい。該線状芳香族ポリマーとしては、フェノール基の縮化カップリング反応により重合せしめた線状芳香族ポリマー、ジハロゲン化合物とビスフェノール化合物の重縮合により得られる芳香族ポリエーテルなどが例示されるが、これらに限られるものではない。中でも芳香族ポリエーテルは、それ自体が低誘電率を有し、かつ絶縁性が良好であることから好ましい。

【0011】本発明の芳香族ポリマーは、上記(1)式において、Aがケイ素であることが、耐熱性が高くなるので好ましい。

【0012】本発明の芳香族ポリマーは、上記(1)式において、B¹、B²、B³のうち少なくとも二つが、炭素数2～10のアルケニル基または炭素数2～10のアルキニル基を有することが好ましく、B¹、B²、B³のうち少なくとも二つが同一の炭素数2～10のアルケニル基または炭素数2～10のアルキニル基を有することがさらに好ましい。このような構造を有する本発明の芳香族ポリマーは、加熱により架橋反応が低温でも速やかに進行する熱硬化性樹脂となる。ここで加熱とは、樹脂が室温以上の温度となるように樹脂に熱を加えることを*



【0015】本発明において、(3)式で示される単位構造を有する芳香族ポリエーテルは、有機溶剤に対する溶解性がより高く、コーティング時の塗布性がより良好である。また、このような構造のポリエーテルは一般にジハロゲン化合物とビスフェノール化合物の重縮合によって得ることができる。

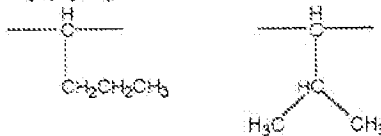
【0016】次に、本発明の線状芳香族ポリマーの製造方法について説明する。本発明の線状芳香族ポリマーの製造方法としては、線状芳香族ポリマーをメタル化し、続いて前記(4)式で示される化合物を置換反応させる工程を含む線状芳香族ポリマーの製造方法が挙げられる。具体的には、線状芳香族ポリマー内の芳香環に結合している水素原子、塩素原子、臭素原子、またはヨウ素

*いい、架橋反応とは、分子内および/または分子間で化学結合を生じ、三次元構造を生成させる反応をいう。

【0013】(1)式におけるB¹、B²、B³のうち少なくとも二つは、炭素数2～10のアルケニル基または炭素数2～10のアルキニル基である。該炭素数2～10のアルケニル基または炭素数2～10のアルキニル基としては、例えば、ビニル基、アリル基、ブテニル基、ペンテニル基、オクテニル基、デケニル基、2-メチルアリル基、ブタジエニル、エチニル基、プロピニル基、ペンチニル基、オクチニル基、またはデチニル基等が挙げられ、ビニル基が好ましい。特に、本発明の芳香族ポリマーとして、(1)式が、トリビニルシリル基であることが好ましい。

【0014】本発明の線状芳香族ポリマーとして、前記(3)式で示される構造単位を有することが好ましい。

(3)式におけるY¹として選ばれる炭素数1～20の炭化水素基としては、 $-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{CH}(\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)=$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)-\text{C}(\text{CH}_3)-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)_2-\text{C}(\text{CH}_3)-$ (各種の異性体を含む)、 $-\text{CH}=\text{CH}-$ 、および以下の基などが例示されるが、これらに限られるものではない。



原子等から選ばれる官能基をメタルと置換反応せしめて活性化させ、次いで(4)式で示されるハロゲン化合物を反応させる。メタル化反応で用いられる溶媒としては特に限定はされないが、線状芳香族ポリマーの溶解性、反応性等からジエチルエーテル、テトラヒドロフランなどのエーテル類が好適に用いられる。

【0017】メタル化反応で用いられる反応剤は、特に限定されるものではないが、例えば、金属リチウム、金属ナトリウム、n-ブチルリチウム、sec-ブチルリチウム、tert-ブチルリチウム等が挙げることができ、またフェニルリチウム、ナフタレンナトリウムやアルキルナトリウムも用いることができる。これらの中で、作業性の面から、n-ヘキサン溶液として入手可能

な n -ブチルリチウムが好ましい。

【0018】次に、本発明の絶縁膜形成用塗布液について説明する。本発明の絶縁膜形成用塗布液は、本発明の線状芳香族ポリマーを含有することを特徴とする。本発明の絶縁膜形成用塗布液は、本発明の線状芳香族ポリマーと有機溶媒とを含むことが好ましい。加熱により架橋反応を生じる官能基を導入された本発明の線状芳香族ポリマーは、ろ過により、または有機溶媒に溶解させた溶液において水洗などの処理により、金属、塩物質などの無機物質が除かれ、有機溶媒に溶解した絶縁膜形成用塗布液として提供される。

【0019】このときの有機溶媒は、前記のメタル化反応に用いた溶媒でもその他の溶媒でもよい。溶媒としては、例えば、メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、2-メトキシエタノール等のアルコール類；酢酸エチル、酢酸 n -ブチル、酢酸イソブチル、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート等のエステル類；2-ペンタノン、2-ヘプタノン、アセチルアセトン等のケトン類；ジエチルエーテル、ジブチルエーテル等のエーテル類、アニソール、フェネトール等のフェノールエーテル類などが挙げられる。

【0020】

【実施例】本発明を実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

合成例1

2Lの四つ口フラスコに1、1-ビス(4-ヒドロキシ-3-シクロヘキシルフェニル)シクロヘキシリデン172、8g、苛性ソーダ33g、ベンゾフェノン560gおよびトルエン300gを仕込み、還流脱水を行った。脱水が完了した後、ジヨードビフェニル162、4gを添加した。更に塩化第1銅0、4gをピリジン40gに溶解させた溶液を添加し、内温185℃で6時間反応させた。室温まで冷却させた後、得られた反応溶液を、イソプロピルアルコール3Kgに酢酸80gを混合した溶液に加え、生成物を析出させた。析出した結晶をろ過し、大量のメタノールで洗浄し、芳香族ポリエーテルを得た。該芳香族ポリエーテルのポリスチレン換算重量平均分子量は、4000であった。

【0021】合成例2

* 【表1】

樹脂溶液		実施例1	比較例1
加熱処理	250℃ 1時間	変化なし	溶解
	300℃ 30分	変化なし	変化なし
	350℃ 30分	変化なし	変化なし

実施例1においては、250℃の加熱処理であっても、十分な熱硬化が生じて、得られた絶縁膜は、耐薬品性に優れていることが分かる。

【0024】

【発明の効果】本発明の線状芳香族ポリマーは、熱硬化

* 窒素置換した200mlの四つ口フラスコに、原料となる合成例1で得られた芳香族ポリエーテル樹脂4g、溶媒としてTHFを40g加え、該芳香族ポリエーテル樹脂を溶解させた。 n -ブチルリチウム(1、6M n -ヘキサン溶液)を23ml加え、窒素気流下1時間攪拌し、その後トリビニルシリクロライドを4、9g加えさらに攪拌を約2時間続けた。反応終了後、メタノール1000g、酢酸20gの混合溶媒中に反応溶液をチャージし、高分子量物を析出させ、濾過した後メタノール洗浄および水洗を行い、白色粉末状の高分子量物を得た。 $^1\text{H-NMR}$ 、 ^{13}C 測定によりトリビニル基導入の確認を行った。次いで、得られた線状芳香族ポリマーをアニソールで固形分15重量%になるように調製した。これを樹脂溶液Bとする。

【0022】合成例3

窒素置換した300mlの四つ口フラスコに、原料となる合成例1で得られた芳香族ポリエーテル樹脂4g、溶媒としてTHFを100ml加え、該芳香族ポリエーテル樹脂を溶解させた。 n -ブチルリチウム(1、6M n -ヘキサン溶液)を21、5ml加え、窒素気流下1時間攪拌し、その後アリルブロミドを4、0g加えさらに攪拌を約1時間続けた。反応終了後、得られた反応溶液をメタノール650g、酢酸20gの混合溶媒中にチャージし、高分子量物を析出させ、濾過した後メタノール洗浄および水洗を行い、白色粉末状の高分子量物を得た。 $^1\text{H-NMR}$ 、 ^{13}C 測定によりアリル基導入の確認を行った。次いで、得られた線状芳香族ポリマーをアニソールで固形分15重量%になるように調製した。これを樹脂溶液Aとする。

【0023】実施例1、比較例1

合成例1および2で得られた樹脂溶液をそれぞれ0、1 μm フィルターでろ過した。これを、それぞれ4インチシリコンウェハーに回転数3000rpmでスピコートし、150℃で1分間ベークした後、窒素雰囲気下、250℃、300℃、350℃で加熱処理を行った。得られた絶縁膜が塗布されたシリコンウェハーを、アニソール(樹脂溶液溶媒)に室温下10分間浸漬したあとの絶縁膜の状態を表1に示す。

が低温で速やかに進み、耐薬品性に優れていることが特徴であり、電子部品の絶縁膜として好適に用いることができる。該線状芳香族ポリマーを含む絶縁膜形成用塗布液を用いて、好適な絶縁膜を形成することができ、有用な半導体装置を得ることができる。

フロントページの続き

(51)Int. Cl.
H01B 3/30
3/42
3/46
// C08J 3/24 C E Z
C08L 101:02

識別記号

F I
H01B 3/30 M 5C305
3/42 C
3/46 E
C08J 3/24 C E Z Z
C08L 101:02

特許請求の範囲 (参考)

(72)発明者 チェ ヒョンチョル
茨城県つくば市北原6 住友化学工業株式
会社内

Fターム(参考) 4F070 AA47 AA52 AA58 AA72 AA74
AA78 AB01 AB02 AB07 AB09
AC06 AC33 AC38 AC52 AC63
AC67 AE08 GA01 GA06 GA08
GB02 GC09
4J005 AA23 BA00 BD00 BD03 BD08
4J029 AA01 AB07 AD10 AE11 KH01
4J030 BA10 BA42 BD01 BD06 BD11
BF13 BF19 BG02 BG04 BG09
CA01 CA02
4J038 DG071 DF051 DG011 CA01
CA02 CA12 CA15 MA06 MA09
NA04 NA14 NA21 PA19 PB09
PC02
5C305 AA07 AA11 AB31 AB36 BA09
CA13 CA26 CA32 CA35